



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

REC'D 18 FEB 2004

WIPO

PCT

Bescheinigung

Certificate

Attestation

Die angehefteten Unterla-
gen stimmen mit der
ursprünglich eingereichten
Fassung der auf dem näch-
sten Blatt bezeichneten
europäischen Patentanmel-
dung überein.

The attached documents
are exact copies of the
European patent application
described on the following
page, as originally filed.

Les documents fixés à
cette attestation sont
conformes à la version
initialement déposée de
la demande de brevet
européen spécifiée à la
page suivante.

Patentanmeldung Nr. Patent application No. Demande de brevet n°

03003573.7

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

Der Präsident des Europäischen Patentamts;
Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

Le Président de l'Office européen des brevets
p.o.

R C van Dijk



Anmeldung Nr:
Application no.: 03003573.7
Demande no:

Anmeldetag:
Date of filing: 17.02.03
Date de dépôt:

Anmelder/Applicant(s)/Demandeur(s):

Methanol Casale S.A.
Via S. Carlo, 22
6932 Breganzona
SUISSE

Bezeichnung der Erfindung/Title of the invention/Titre de l'invention:
(Falls die Bezeichnung der Erfindung nicht angegeben ist, siehe Beschreibung.
If no title is shown please refer to the description.
Si aucun titre n'est indiqué se référer à la description.)

Method for carrying out chemical reactions in pseudo-isothermal conditions

In Anspruch genommene Priorität(en) / Priority(ies) claimed /Priorité(s)
revendiquée(s)
Staat/Tag/Aktenzeichen/State/Date/File no./Pays/Date/Numéro de dépôt:

Internationale Patentklassifikation/International Patent Classification/
Classification internationale des brevets:

B01J/

Am Anmeldetag benannte Vertragsstaaten/Contracting states designated at date of
filing/Etats contractants désignées lors du dépôt:

AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HU IE IT LU MC NL
PT SE SI SK TR LI

Titolo: Metodo per effettuare reazioni chimiche in condizioni pseudo-isoterme.

DESCRIZIONE

Campo di applicazione

5 La presente invenzione si riferisce, nel suo aspetto più generale, a un metodo per effettuare reazioni chimiche in condizioni controllate di pseudo-isotermicità, vale a dire in condizioni in cui la temperatura di reazione è mantenuta in un ristretto intervallo di valori attorno ad una
10 prefissata temperatura T di reazione.

In particolare la presente invenzione concerne un metodo per controllare la temperatura di reazione in un letto catalitico di un reattore in cui avviene una reazione chimica in condizioni pseudo-isoterme tramite almeno uno
15 scambiatore di calore, percorso da un rispettivo fluido operativo, immerso in detto letto catalitico.

Tecnica Nota

E' noto, per le reazioni pseudo-isotermiche e i reattori catalitici della tecnica nota, controllare la temperatura
20 di reazione mediante scambio termico fra il fluido operativo che scorre all'interno di appropriati scambiatori di calore e il letto catalitico nel quale detti scambiatori sono immersi e nel quale avviene la reazione.

Ed è nota la costante ricerca di una ottimizzazione di un
25 tale scambio al fine di migliorare il rendimento della reazione. Questo scambio viene attuato in modo tale da consentire il trasferimento della maggior quantità possibile di calore fra fluido operativo e letto catalitico. E cioè, massimizzando il coefficiente di

scambio termico all'interno degli scambiatori di calore, dove fluisce il fluido operativo, e all'interno del letto catalitico.

5 Così facendo, tuttavia, si è notato che si verificano gradienti di temperatura anche di valore consistente nel letto catalitico.

10 In particolare, la temperatura in ogni punto del letto varia fra un primo valore in corrispondenza degli scambiatori di calore, e cioè alla temperatura della parete esterna degli scambiatori stessi, e un secondo valore di temperatura che si rileva in quei punti del letto catalitico situati alla massima distanza dagli scambiatori di calore.

15 Nel seguito della descrizione e nelle successive rivendicazioni, detto secondo valore di temperatura verrà identificato con il termine "temperatura limite" T_1 .

20 Se la reazione che avviene all'interno del reattore è esotermica, detta temperatura limite T_1 corrisponderà a un valore T_{\max} massimo prefissato della temperatura, al di sopra del quale non è conveniente far avvenire la reazione, poiché intervengono reazioni secondarie che diminuiscono la resa e, inoltre, si assiste a una diminuzione dell'efficacia del catalizzatore.

25 Se la reazione che avviene all'interno del reattore è endotermica, detta temperatura limite T_1 corrisponderà a un valore di temperatura, al di sotto del quale non avviene la reazione.

La conseguente disomogeneità nella distribuzione della temperatura provoca un allontanamento, all'interno del

letto catalitico, dalle volute condizioni di pseudo-isotermicità, con peggioramento della resa globale del reattore stesso.

Sommario dell'invenzione

5 Il problema tecnico alla base del presente trovato è quello di escogitare un metodo per controllare, in modo semplice ed economico, la pseudo-isotermicità di una reazione chimica all'interno di un letto catalitico riducendo la
10 differenza di temperatura (ΔT) fra la temperatura del letto catalitico in corrispondenza della parete degli scambiatori di calore e la temperatura limite T_1 . O in altre parole riducendo l'entità del gradiente di temperatura fra la parete esterna dello scambiatore e la temperatura limite T_1 .

15 In tal modo vengono superati gli inconvenienti della tecnica nota.

Il suddetto problema tecnico è risolto secondo l'invenzione da un metodo per controllare la temperatura di reazione in un letto catalitico di un reattore in cui avviene una
20 reazione chimica in condizioni pseudo-isoterme tramite almeno uno scambiatore di calore, percorso da un rispettivo fluido operativo, immerso in detto letto catalitico, il quale metodo è caratterizzato dal fatto di comprendere la fase di:

25 - regolare la velocità di detto fluido di scambio termico all'interno del rispettivo scambiatore di calore entro valori prefissati, in modo che il coefficiente di scambio termico all'interno di detto scambiatore di calore sia inferiore al coefficiente di scambio termico nel letto
30 catalitico.

Riducendo il coefficiente di scambio termico all'interno dello scambiatore di calore al di sotto di quello all'interno del letto catalitico, si ottiene un aumento del gradiente di temperatura all'interno di detto scambiatore e
5 viene aumentata conseguentemente la temperatura in corrispondenza della parete dello scambiatore di calore.

Il risultato finale è la diminuzione della summenzionata differenza di temperatura ΔT fra la temperatura del letto catalitico in corrispondenza della parete di uno
10 scambiatore di calore e la temperatura limite T_1 nel letto catalitico.

In netto contrasto con l'insegnamento costante dell'arte nota, si è sorprendentemente riscontrato che, riducendo, in modo opportuno, il coefficiente di scambio termico
15 all'interno degli scambiatori di calore, la miscela reagenti/prodotti che attraversa il letto catalitico beneficia di una maggiore uniformità di temperatura (minore ΔT) che a sua volta consente di ottenere una maggiore efficienza di reazione e quindi una maggiore resa globale
20 di conversione.

Preferibilmente, ma non limitativamente, la velocità di detto fluido di scambio termico all'interno del rispettivo scambiatore di calore è regolata entro valori tali per cui il coefficiente di scambio termico all'interno degli
25 scambiatori di calore è uguale o inferiore a $2/3$ del coefficiente di scambio termico all'interno del letto catalitico.

Detto metodo permette di risolvere il problema tecnico e di superare gli inconvenienti della tecnica nota così come
30 sopra descritti.

Secondo un aspetto particolare della presente invenzione gli scambiatori di calore immersi nel letto catalitico sono almeno due ed il metodo appena descritto si caratterizza per il fatto di comprendere le fasi di:

- 5 - rilevare in continuo in detto letto catalitico la differenza di temperatura, ΔT , fra la temperatura del letto catalitico in corrispondenza di detti scambiatori di calore ed una temperatura limite, T_1 , in corrispondenza di un punto mediano tra detti scambiatori di calore;
- 10 - variare la velocità di detto fluido di scambio termico all'interno di detti scambiatori di calore, in funzione della suddetta differenza di temperatura ΔT , con ottenimento di una corrispondente variazione del coefficiente di scambio termico all'interno di detti
- 15 scambiatori di calore.

Ulteriori caratteristiche e vantaggi del trovato risulteranno maggiormente dalla descrizione dettagliata di un esempio di realizzazione del metodo secondo il trovato, fatta qui di seguito con riferimento ai disegni allegati, a

20 titolo indicativo e non limitativo.

Breve descrizione delle figure

La figura 1 mostra schematicamente una vista in sezione di un reattore pseudo-isotermo per attuare il metodo della presente invenzione.

- 25 ~~La~~ figura 2 mostra schematicamente in sezione un dettaglio di un reattore pseudo-isotermo operante secondo il metodo dell'arte nota e relativo profilo di temperatura.

La figura 3 mostra schematicamente in sezione un dettaglio del reattore pseudo-isotermo di figura 1 e relativo profilo di temperature.

La figura 4 mostra schematicamente, in sezione ed in scala ingrandita, un ulteriore dettaglio del reattore pseudo-isotermo di figura 1.

Descrizione dettagliata di una forma di realizzazione preferita dell'invenzione

Con riferimento alla figura 1, con 1 è generalmente indicato un reattore chimico catalitico pseudo-isotermo per la sintesi di sostanze chimiche quali ad esempio l'ammoniaca, il metanolo, la formaldeide, l'acido nitrico, secondo il metodo della presente invenzione.

Detto reattore 1 comprende un mantello 2 cilindrico, un fondo superiore 3 e un fondo inferiore 4, un bocchello 5 di alimentazione dei reagenti, un bocchello 6 di scarico dei prodotti di reazione, un bocchello 7 di alimentazione di un fluido operativo di scambio termico e un bocchello 8 per lo scarico di detto fluido operativo.

Il reattore 1 comprende inoltre un letto catalitico 24, definito tra le linee tratteggiate 24a e 24b e supportato in modo di per se noto, all'interno del quale è posta una unità di scambio termico 9, che comprende a sua volta una pluralità di scambiatori di calore 12. Gli scambiatori di calore 12 sono in comunicazione di fluido con detto bocchello 7 di alimentazione, in corrispondenza di una loro estremità inferiore, tramite un condotto 10 distributore, ed in comunicazione di fluido con detto bocchello 8 di scarico, in corrispondenza di una estremità opposta, tramite un condotto 11 collettore. In particolare, detti

scambiatori di calore 12 sono ad esempio tubi o piastre di scambio termico.

5 Nelle figure 2 e 3 è rappresentato un dettaglio di un reattore pseudo-isotermo operante secondo il metodo dell'arte nota ed un dettaglio del reattore di figura 1 operante secondo il metodo della presente invenzione, rispettivamente.

10 In tali figure, particolari equivalenti tra loro e/o equivalenti ai particolari del reattore di figura 1, sono indicati con gli stessi segni di riferimento.

Con 13 è generalmente indicata la parete degli scambiatori di calore 12 situati all'interno del letto catalitico 24. Con 13a si vuole invece indicare la superficie esterna o superficie lato catalizzatore della parete 13 degli
15 scambiatori di calore 12.

In funzionamento, il fluido operativo di scambio termico percorre una zona 14, interna agli scambiatori di calore 12, mentre la miscela di reagenti e di prodotti fluisce in una zona 15 di reazione del letto catalitico 24 definita
20 tra scambiatori 12 di calore adiacenti.

Il profilo della distribuzione delle temperature è rappresentato in entrambe le figure 2 e 3 dalle linee 17 e 19. La linea 17 è relativa alla distribuzione di temperature nella zona 14, all'interno degli scambiatori
25 12, mentre la linea 19 è relativa alla distribuzione di temperature nella zona 15, all'interno del letto catalitico 24. In generale, il profilo di temperature all'interno di un rispettivo reattore pseudo-isotermo è quello risultante dalla combinazione delle linee 17 e 19.

Nei reattori dell'arte nota (figura 2), si può facilmente notare come le linee 17 sono molto piatte, quasi rettilinee e perpendicolari alla parete 13 degli scambiatori 12 di calore 12. Ciò è determinato da un coefficiente di scambio termico elevato (il maggiore possibile) all'interno di tali
5 scambiatori 12 di calore.

Differentemente, sempre nei reattori dell'arte nota (figura 2), la linea 19 relativa alla distribuzione delle temperature nella zona 15 del letto catalitico 24 presenta
10 un notevole inarcamento. Ciò è causato, da un lato, dal diverso (minore) coefficiente di scambio termico presente nel letto catalitico 24 rispetto al coefficiente di scambio termico (maggiore) all'interno degli scambiatori 12, che provoca una grande differenza (disomogeneità) di
15 temperatura fra la temperatura di parete (superficie 13a) degli scambiatori 12 e la temperatura della miscela reagenti/prodotti fluente nella zona 15 di reazione.

In alte parole, la temperatura varia, tra le due zone 14 e 15, fra un valore minimo, T_{min} , corrispondente al centro
20 della zona 14 all'interno degli scambiatori 12 di calore ed un valore massimo, T_{max} (equivalente alla temperatura limite T_1 più sopra descritta), corrispondente al centro della zona 15 del letto catalitico 24 (ovvero nel punto mediano tra due scambiatori di calore 12 adiacenti).

25 Tra le due zone 14 e 15 vi è quindi un gradiente di temperatura, ΔT_{tot} , che come si può vedere in figura 2 è situato prevalentemente nella zona 15, creando una elevata disomogeneità di temperatura nel letto catalitico 24, con conseguente perdita di efficienza di reazione e quindi

riduzione nella resa di conversione, per i motivi qui di seguito descritti.

La parte del gradiente di temperatura ΔT_{loc} situato nella zona 15 è rappresentato con il segno di riferimento ΔT , che sta ad indicare la differenza di temperatura, più sopra descritta, fra la temperatura limite T_1 (corrispondente a T_{max}) e la temperatura in corrispondenza della superficie esterna 13a degli scambiatori 12.

All'interno della differenza (o gradiente) di temperatura ΔT , nella zona 15 di reazione, è individuato un intervallo di temperature dove la reazione avviene in condizioni di efficienza, e quindi di resa, ottimali (condizioni di pseudo-isotermicità). Tale intervallo di temperatura è compreso tra la temperatura T_{max} ($=T_1$) ed una temperatura T_0 , al di sotto della quale la reazione non avviene o comunque avviene in condizioni inefficienti.

Dalla figura 2, risulta evidente come in una porzione considerevole della zona 15 del letto catalitico 24, identificata con 18, la temperatura di reazione è al di sotto dei valori ottimali a scapito dell'efficienza e della resa globale di conversione del reattore.

Grazie al metodo secondo la presente invenzione, regolando opportunamente la velocità di attraversamento di detto scambiatore di calore 12, da parte del fluido operativo, (e cioè, nel caso dell'esempio di figura 3, riducendo tale velocità rispetto alla velocità di attraversamento dell'esempio di figura 2) viene vantaggiosamente ridotto il coefficiente di scambio termico all'interno degli scambiatori di calore 12 a valori inferiori rispetto al

coefficiente di scambio termico all'interno del letto catalitico 24.

In questo modo, come rappresentato in figura 3, si ottiene un aumento del gradiente di temperatura all'interno degli
5 scambiatori 12 (la linea 17 ha infatti una concavità maggiore rispetto alla figura 2) e viene aumentata conseguentemente la temperatura in corrispondenza della loro superficie esterna 13a.

Di conseguenza, a parità di gradiente di temperatura ΔT_{tot}
10 tra le zone 14 e 15 rispetto all'arte nota (figura 2), viene ridotto il gradiente di temperatura nella zona 15 del letto catalitico 24, e cioè viene ridotta la differenza di temperatura ΔT fra la temperatura limite T_1 (corrispondente a T_{max}) e la temperatura in corrispondenza della superficie
15 esterna 13a degli scambiatori 12.

Per cui, il profilo delle temperature (linea 19) in detta zona 15 presenta una concavità molto piccola e, come indicato in figura 3, è compreso nell'intervallo di temperature $(T_{max}-T_0)$ dove la reazione avviene in
20 condizioni di efficienza (e quindi di resa) ottimali (condizioni di pseudo-isotermicità).

Per questa ragione, in tutta la zona 15 del letto catalitico 24 è possibile effettuare la reazione in modo efficiente a tutto vantaggio della resa globale di
25 conversione.

Secondo un aspetto particolare e vantaggioso della presente invenzione, la differenza di temperatura ΔT fra la temperatura limite T_1 (corrispondente a T_{max}) e la temperatura in corrispondenza della superficie esterna 13a

degli scambiatori 12 viene rilevata in continuo, e la velocità del fluido di scambio termico fluente all'interno degli scambiatori di calore 12 viene variata in funzione della suddetta differenza di temperatura ΔT , con
5 ottenimento di una corrispondente variazione del coefficiente di scambio termico all'interno di detti scambiatori di calore 12 e quindi della differenza (gradiente) di temperatura ΔT all'interno della zona 15 del letto catalitico 24.

10 A tale scopo, il reattore pseudo-isotermo di figura 1 comprende una apparecchiatura 20, rappresentata schematicamente in figura 4, per la rilevazione in continuo della temperatura nella zona 15 del letto catalitico 24 e la variazione - sempre in continuo - della velocità del
15 fluido operativo fluente all'interno degli scambiatori di calore 12 in funzione della temperatura rilevata.

In tale figura, particolari equivalenti ai particolari delle figure precedenti sono indicati con gli stessi segni di riferimento.

20 L'apparecchiatura 20 (Fig. 4) comprende almeno una sonda 23 ad esempio una termocoppia) situata all'interno della zona 15 di reazione, per la misurazione in continuo della differenza di temperatura ΔT fra la temperatura nel centro della zona 15 e la temperatura in corrispondenza della
25 superficie esterna 13a degli scambiatori di calore 12.

Tale apparecchiatura 20 comprende inoltre una centralina di controllo 21, in comunicazione di dati - tramite la linea di flusso 25 - con la sonda 23, che elabora i valori della temperatura rilevati dalla sonda 23, ed un regolatore 22
30 della velocità di alimentazione del fluido operativo F_0

agli scambiatori di calore 12, controllato da detta centralina di controllo 21 (linea di flusso 26). Codesto regolatore 22 può essere ad esempio una valvola o una pompa per l'alimentazione di fluido operativo.

- 5 Il segno di riferimento P sta ad indicare un dettaglio interno del reattore 1 di figura 1, rappresentato in figura 4 in scala ingrandita per meglio evidenziare le caratteristiche dell'apparecchiatura 20.

- 10 Questa soluzione permette di controllare costantemente la differenza di temperatura ΔT all'interno della zona 15 di reazione, calibrando dinamicamente la velocità di apporto di fluido operativo Fo all'interno degli scambiatori di calore 12.

- 15 Il trovato così concepito è suscettibile di ulteriori varianti e modifiche, tutte rientranti nell'ambito di protezione della presente invenzione definito dalle seguenti rivendicazioni.

RIVENDICAZIONI

1. Metodo per controllare la temperatura di reazione in un letto catalitico (24) di un reattore (1) in cui avviene una reazione chimica in condizioni pseudo-isoterme tramite
5 almeno uno scambiatore di calore (12), percorso da un rispettivo fluido operativo, immerso in detto letto catalitico (24), il quale metodo è caratterizzato dal fatto di comprendere la fase di:

- regolare la velocità di detto fluido di scambio termico
10 all'interno del rispettivo scambiatore di calore (12) entro valori prefissati, in modo che il coefficiente di scambio termico all'interno di detto scambiatore di calore (12) sia inferiore al coefficiente di scambio termico nel letto catalitico (24).

15 2. Metodo secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che detta velocità di detto fluido di scambio termico all'interno del rispettivo scambiatore di calore è regolata entro valori tali per cui il coefficiente di scambio
20 termico all'interno degli scambiatori (12) di calore è uguale o inferiore a $2/3$ del coefficiente di scambio termico all'interno del letto (24) catalitico.

3. Metodo secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che detto reattore (1) comprende almeno due
25 scambiatori di calore (12) immersi nel letto catalitico (24), e di comprendere le fasi di:

- rilevare in continuo in detto letto catalitico la differenza di temperatura, ΔT , fra la temperatura del letto catalitico in corrispondenza di detti scambiatori di calore ed una temperatura limite, T_1 , in corrispondenza del punto
30 mediano tra detti scambiatori di calore;

- variare la velocità di detto fluido di scambio termico all'interno di detti scambiatori di calore, in funzione della suddetta differenza di temperatura ΔT , con ottenimento di una corrispondente variazione del
5 coefficiente di scambio termico all'interno di detti scambiatori di calore.

4. Reattore chimico pseudo-isotermo comprendente un letto catalitico (24) ed almeno due scambiatori di calore (12) immersi in detto letto catalitico (24), caratterizzato dal
10 fatto di comprendere una apparecchiatura (20) per la regolazione della temperatura all'interno di una zona (15) di reazione di detto letto catalitico definita tra detti scambiatori di calore (12), comprendente una sonda (23) per la misurazione in continuo della differenza di temperatura
15 ΔT fra la temperatura in una posizione centrale di detta zona (15) e la temperatura di detta zona (15) in corrispondenza di detti scambiatori di calore (12), una centralina di controllo (21), in comunicazione di dati con detta sonda (23), ed un regolatore (22) della velocità di
20 alimentazione di un fluido operativo (F_o) in detti scambiatori di calore (12), in comunicazione di dati con detta centralina di controllo (21).

RIASSUNTO

Metodo per controllare la temperatura di reazione in un letto catalitico (24) di un reattore (1) in cui avviene una reazione chimica in condizioni pseudo-isoterme tramite
5 almeno uno scambiatore di calore (12), percorso da un rispettivo fluido operativo, immerso nel letto catalitico (24).

1/3

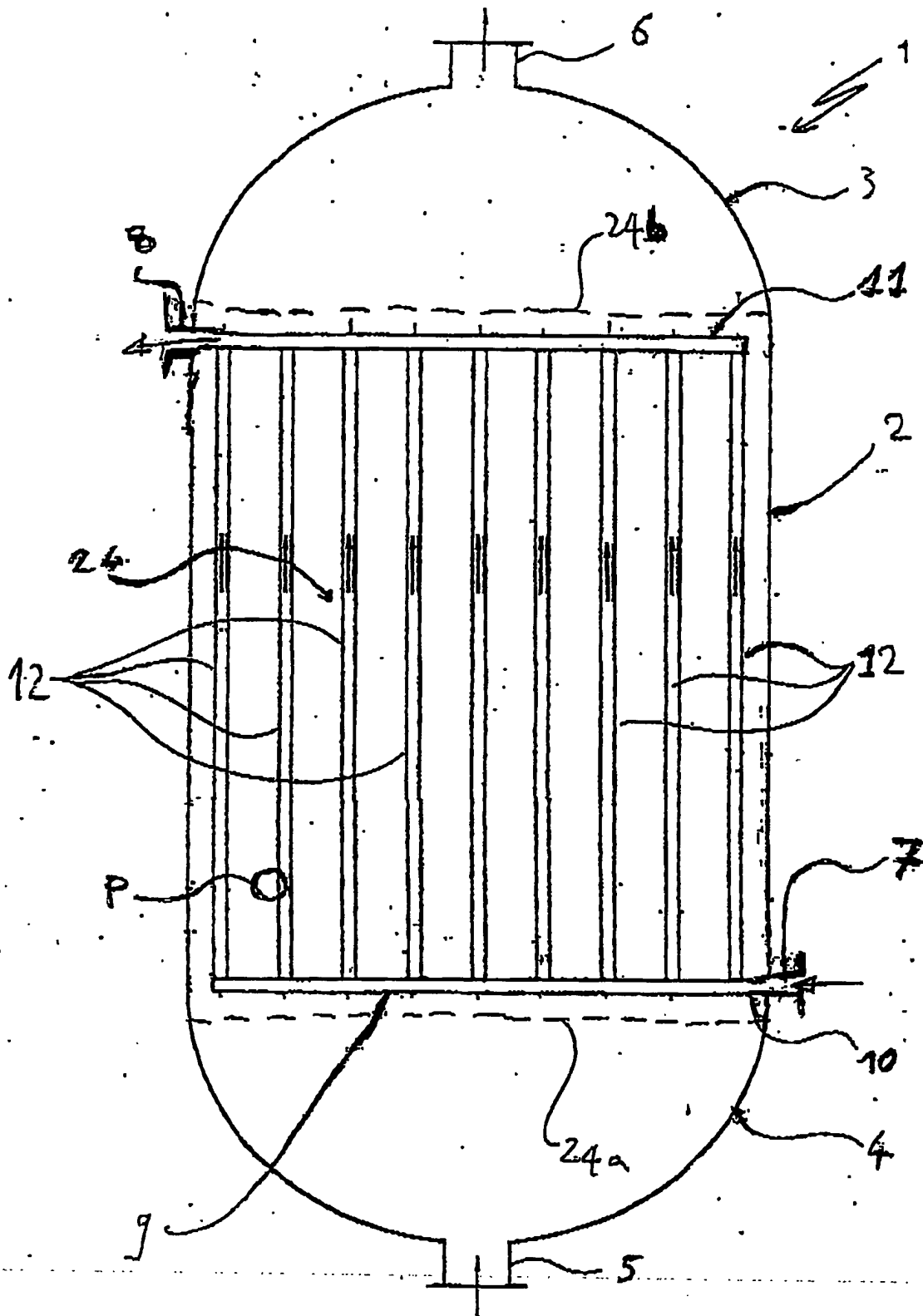


Fig. 1

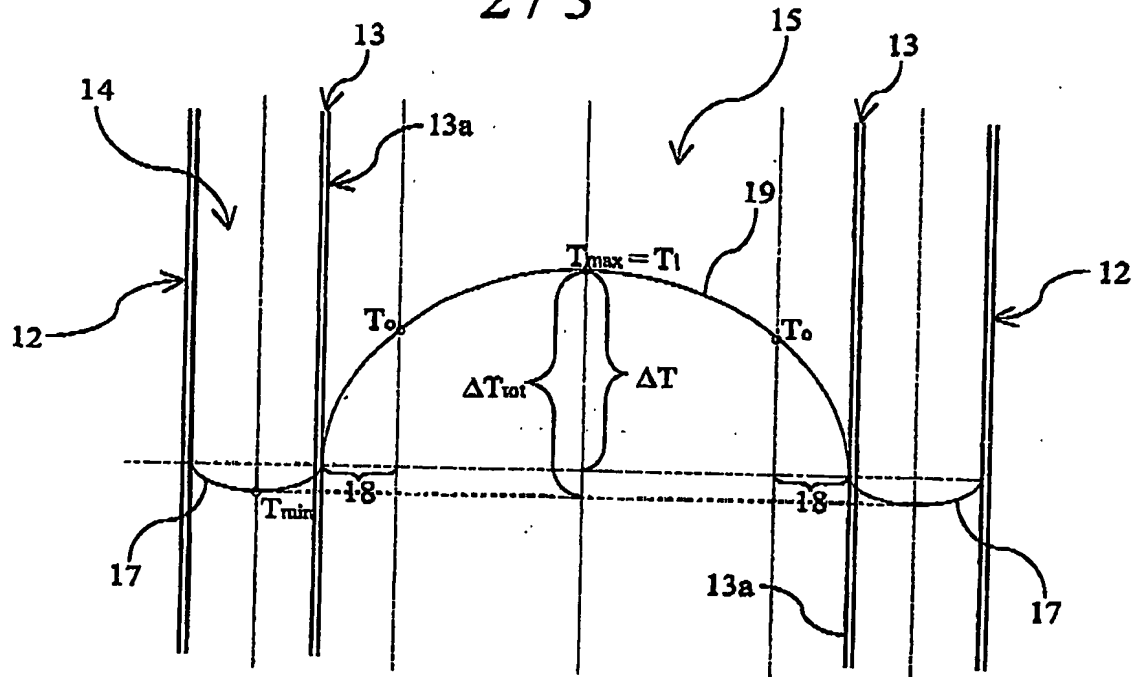


Fig 2 (Prior Art)

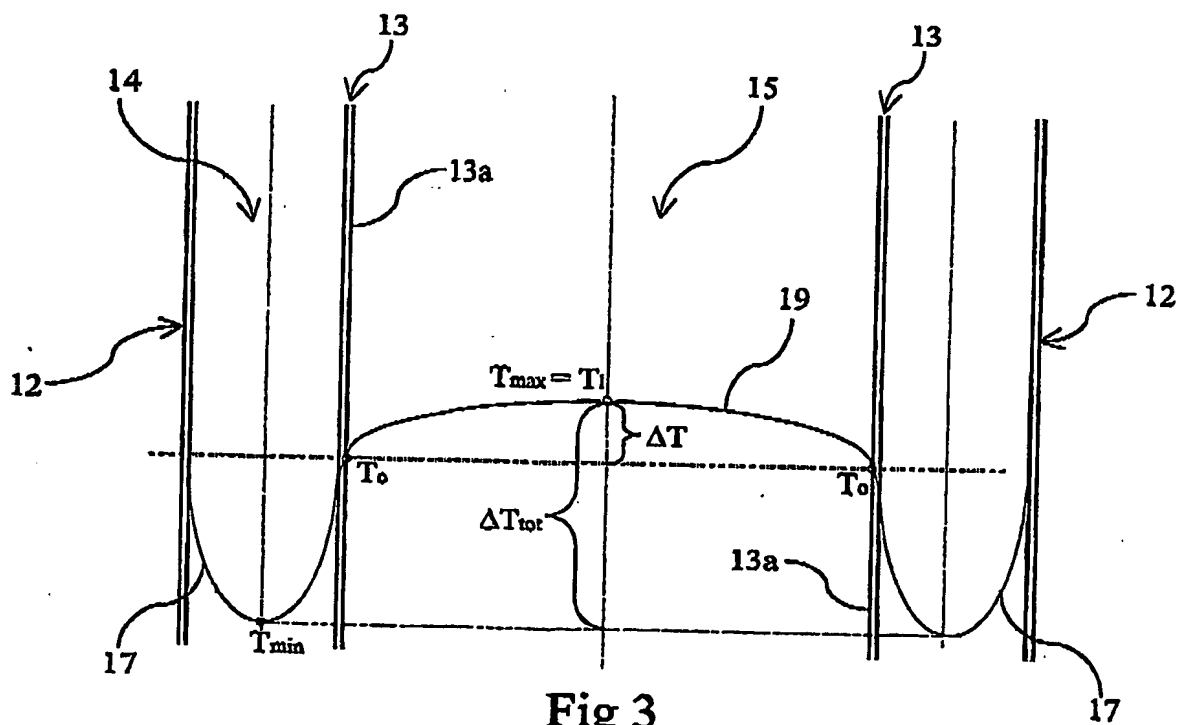


Fig 3

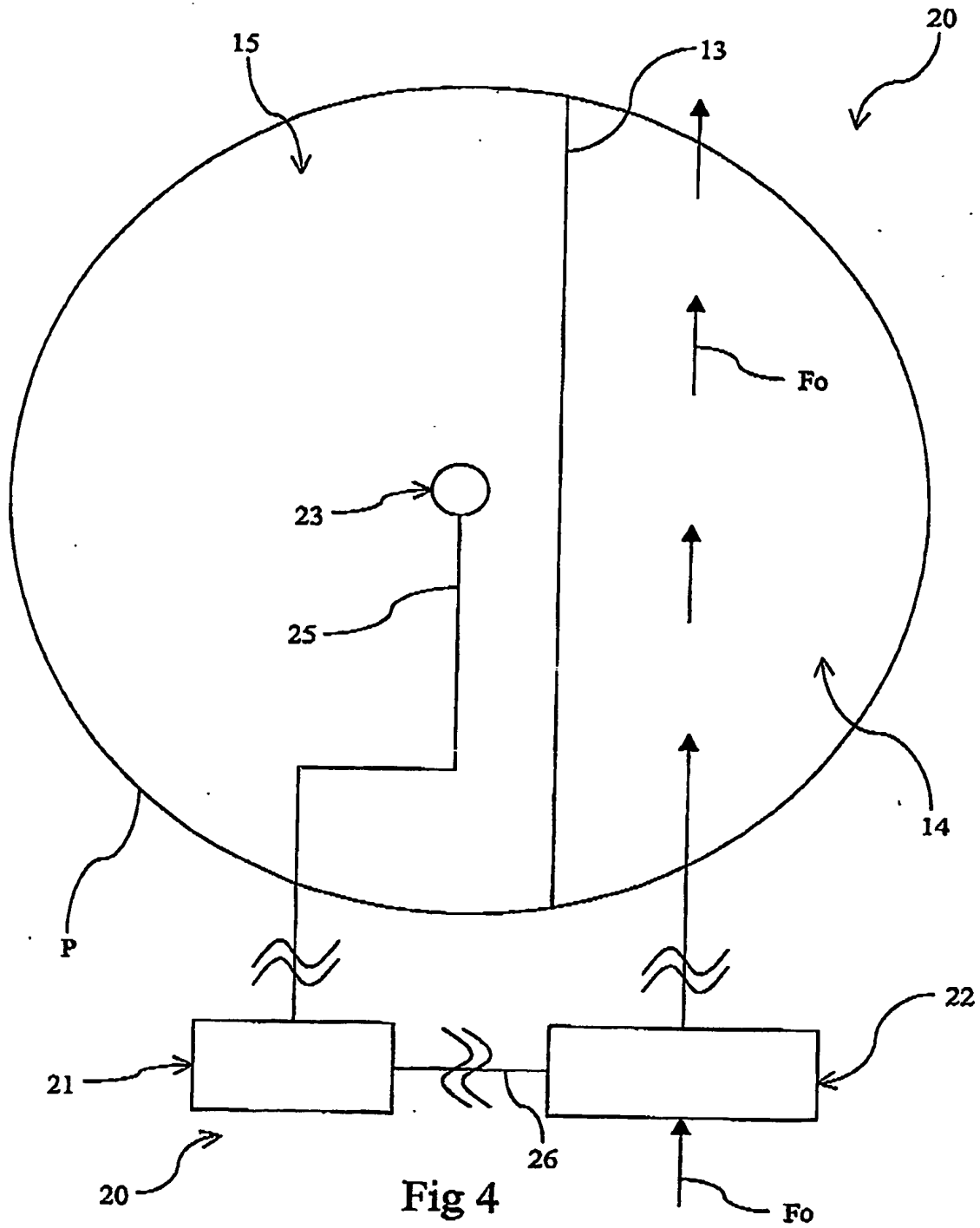


Fig 4